



TITLE:

# 環境工学分野のフロンティア 微量 汚染物質から統合的湖沼流域管理 へそしてその融合へ

AUTHOR(S):

清水, 芳久

---

CITATION:

清水, 芳久. 環境工学分野のフロンティア 微量汚染物質から統合的湖沼  
流域管理へそしてその融合へ. 環境衛生工学研究 2010, 24(2): 3-11

ISSUE DATE:

2010-07

URL:

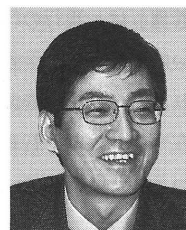
<http://hdl.handle.net/2433/153315>

RIGHT:

京都大学環境衛生工学会

## 特集記事 環境工学分野のフロンティア

# 微量汚染物質から統合的湖沼 流域管理へ そしてその融合へ

清水 芳久 京都大学大学院工学研究科附属流域圏総合環境質研究  
センター 環境質管理分野教授

## 1. 流域圏総合環境質研究センターと 環境質管理分野の役割

流域圏総合環境質研究センター(以下センター)は、大津市由美浜にあり、隣に大津市水再生センター、近くにプリンスホテルがあります。吉田キャンパスからは、17 km 程の距離で、車では約40分(非渋滞時)で到着できます。電車・バス等の公共交通機関を利用した場合は、1時間15分程度のアクセスです。付近の琵琶湖岸は整備され、良好な周辺環境が維持されています。

センターは、昭和46年に工学部衛生工学科の「水質汚濁シミュレーション設備」として開設されました。昭和60年には工学部附属「環境微量汚染制御実験施設」となり、平成7年からは工学研究科附属「環境質制御研究センター」として拡充され、世界的な環境質(特に水環境中の微量な毒性物質)のリスクの制御に関する研究を実施してきました。平成17年に、より一層幅広い研究・教育体制が必要となり、工学研究科附属「流域圏総合環境質研究センター」に改組され、現在まで、教育・研究活動を行ってきています。

現代は、健康で文化的、かつ福祉に富んだより高度な生活の場や自然(即ち、環境質)を求める社会的ニーズの増大と、環境質を脅かすリスク要因の増大により、環境質に関してはその制御に加え、将来を予見・管理することが必要な時代となってきています。このことは我が国のみならず、世界的にもリスク低減が重要であり、なかでも途上国での水問題(特に飲み水と衛生問題)の解決が世界的な緊急課題です。この解決のためには、河川や湖沼流域全体の広域管理と予見が不可欠です。また、教育機能の強化、産学連携や地域貢献活動の充実が求められ、研究、教育成果の目に見える形での実社会への還元が強く求められています。

琵琶湖・淀川流域は、陸・湖・河川・海が一体となった日本の代表的な流域の一つです。センターは、この流域内でも特に重要な琵琶湖沿岸にあり、湖・河川・海・森林・農地・都市・工業地等が存在する理想的な教育・研究対象を持っています。センターでは、琵琶湖の水をポンプで実験室内まで直接導水して研究に利用することができる設備も有しています。

センターでは、最新鋭の研究設備を利用して、水環境・土壌環境・大気環境における質に影響する物質の発生予見・動態把握・評価・制御・監視・管理に関する基礎および応用研究の総合化を図り、さらに、地域環境問題を解決するための人材の育成およびそれに必要な管理技術を研究・開発するため、行政や研究組織への学生の派遣研修とセンターでの教育・研究(インターブリッジシップ)を行っています。また、センターでの基盤的研究実績を生かし、マレーシアや中国の大学との学術交流を始めた活発な展開を図っています。

センターは、環境質管理、環境質予見および環境質監視分野の3つの分野から構成されています。この中で私が担当する環境質管理分野は、環境質に関わる新規成分の定量・評価方法を開発すると共に、環境質の管理(低減化・維持)に関わる技術的、政策的方法を探索しています。また、環境質の劣化あるいは改善に関する効用と対策に要する負荷の統合的マネジメントを研究しています。

具体的な研究テーマとしては、湖沼流域の水量・水質等についての統合的管理、水環境中の天然溶存有機物の機能評価、汚染土壌や地下水の生物学的浄化・監視方法の開発、等についての研究を実施しています。

## 2. 統合的湖沼流域管理 (Integrated Lake Basin Management)

世界中の各国・地域が目標としている「統合的流域

管理」は、現行の行政システムが様々な問題を有していることから、早急に実現することは困難である。これは、流域を水資源や水環境の観点から見た場合に存在する「縦割り行政」によって誘発されるだけではない。中央集権的に、古典的な法規制により、自然環境を外部対象として管理しようとするこれまでの「Government」パラダイムには限界が存在するのである。多くの人々や団体が異なった目的や価値で流域を利用しているため、「統合的流域管理」をこれまでのトップダウン方式の Command and Control 型の政策で実施するのは困難である。その実現のためには、流域を Complex Dynamics として理解し、ボトムアップ方式で管理する新しい「Governance」パラダイムへの転換が必要となる。これは、流域の分権的経済手法と分権的政策手法の両方を誘導・開発することになり、最終的にはそれぞれの地域の特色を活かした経済活性化や環境共生社会実現にも通じるものと考えられる。

本研究は、まず複数のシナリオにおける流域環境の将来における違いを予測し、次にこの結果を地域住民や関連団体に提示して情報を共有した上で、最終的により良い流域システムの構築を目指そうとするものである。これらの研究から得られる成果は、最終的には地域社会・地域経済と流域の人間活動や生態系を有機的に繋ぐ「持続可能な環境共生社会実現に向けた統合的湖沼流域管理」に通じると考えられる。またこれを通じて、より良い行政システムが誘導され、構築されることにも繋がると考えられる。

## 2.1 流域圏を対象としたダイオキシン類の総合的調査手法の構築とその挙動モデルの開発

環境質管理分野では、まず、標記の研究を琵琶湖流域で実施した。この研究の成果の一つとして、河川・湖沼流域の水文や水中の溶解性水質指標だけではなく、これまで困難とされてきた浮遊性物質 (SS) の再現・予測が可能な水文・水質シミュレーションモデルの開発があげられる。このモデルは、地理情報システム (GIS) に、衛星データ、地理情報、流域情報、気象データ、水文・水質データ等を取り込むことができる汎用性のあるもので、様々な流域への適用が可能なプログラムである。

流域圏における微量汚染物質の持続可能な管理について幾つかの重要な課題が挙げられる中で、本研究では、特にダイオキシン類を指標とした大規模な実測調査およびその挙動 (動態) モデルの設計等を行うことにより、一般流域環境における当該物質の挙動再現、起源の予測、空間分布の推定および将来動向を予測すること等を実施した。ダイオキシン類の調査は、琵琶湖流域 (約3,600 km<sup>2</sup>) の土壌、河川水、河川底質、および琵琶湖水や湖底質について様々な場、時期、タイミングで実施し、モデルについては GIS をベースとした大気拡散モデル (AIST-ADMER) や水文水質挙動解析モデル (BASINS-HSPF) を利用して、挙動の再現・予測を行うとともにその有効性を解析した。一方、ダイオキシン類をはじめとする微量汚染物質の分析については、これまで費用や手間、時間等の問題があったことから、バイオアッセイ [CALUX (R) Assay] による測定手法の有効性を様々な試料 (土壌、水、底質、植生等) を対象に検証した。

本研究では、土壌 (森林、水田、畑等) について主に琵琶湖流域内の野洲川流域 (397 km<sup>2</sup>)、安曇川流域 (315 km<sup>2</sup>) および姉川流域 (373 km<sup>2</sup>) に着目し、また、河川水 (懸濁成分、溶存成分) については野洲川を主な対象として代掻き時、降雨流出時、晴天時等の詳細な調査を行った。また、琵琶湖底質における汚染メカニズムの解析を行うため、底質圏全体 (67地点) を網羅的に調査した。特に、琵琶湖流入河川の河口域を詳細に調査するとともに、第3環流の中心付近においては底質コア (泥深 0~31 cm を29層にスライス) も採取した。採取されたサンプルは、凍結乾燥した後、ダイオキシン類濃度や粒子特性 (有機炭素含有率と粒径) の測定に供した。ダイオキシン類の分析方法は、主に CALUX<sup>®</sup> Assay 法を利用し、一部のサンプルについては HRGC/HRMS 法によって同族・異性体分布を分析した。また、底質コアについては、Pb210法による堆積年代の同定も行った。

まず、琵琶湖流域の陸域土壌については、ダイオキシン類の蓄積状況やその起源および空間分布等を定量的に評価した。陸域土壌におけるダイオキシン類濃度と土壌特性 (有機炭素含有率) との関連性について土地利用および流域ごとに分析した結果から、土壌中ダイオキシン類の起源は、水田土壌と森林土壌とで大きく異なっていることが明らかとなった。水田土壌中のダイオキシン類

は、HRGC/HRMS 法による分析結果 (1,3,6,8-TCDD の割合が多い) から、農薬の不純物として散布されたものが多いと推測された。一方、森林ではどの流域においてもダイオキシン類濃度が有機炭素含有率に強く依存していること (即ち、比例関係であること) が分かった。この比例定数は、野洲川流域で約 1,080 gTEQ/gOC、安曇川流域と姉川流域ではともに約 670 gTEQ/gOC となった。このことは、森林におけるダイオキシン類は大気からの沈着に由来し、各流域内で一様に供給されてきたことを示唆する結果であった。実際に過去の大気濃度の実測値を流域ごとに比較したところ、上記の傾きの比とはほぼ同じになっていた。河川底質のダイオキシン類濃度は、陸域土壌に比べてかなり低い値であった。ダイオキシン類を多く収着している粒径の細かい陸域土壌ほど降雨と共に流出しやすい傾向にあるが、これらの粒子は河川底質として堆積しにくく、河川水と共に SS として輸送され、最終的には琵琶湖の底質に堆積するものと推測された。

次に、森林土壌中ダイオキシン類の主要な起源である焼却場 (大気) 由来のダイオキシン類について、大気拡散モデルを用いた大気挙動の計算を行い、大気濃度と陸域土壌への沈着量 (湿性/乾性沈着量) を推算した。この結果、大気濃度の推定精度、流域への沈着量の推定精度ともに良好であることが確認された。この結果をもとに、ダイオキシン類排出量の経年変化や土壌中における分解を考慮して、琵琶湖流域における土壌中ダイオキシン類蓄積量の空間分布を推定した。流域ごとの推定蓄積量は、野洲川流域で 0.220 gTEQ/km<sup>2</sup>、安曇川流域で 0.093 gTEQ/km<sup>2</sup>、姉川流域で 0.121 gTEQ/km<sup>2</sup> 程度となり、これらの値の比は、先に述べた実測に基づくダイオキシン類汚染レベルの比と近い傾向を示した。この結果をベースとして、琵琶湖流域の森林土壌におけるダイオキシン類蓄積量 (計 3,100 gTEQ) の空間分布を推定することが可能となった。

本研究では、大量の水試料を半自動で濃縮できる装置を活用することや水中有機物の濃度を指標として用いることにより時間変化を推定する等の工夫を行って、河川水中ダイオキシン類の流出負荷量を推定した。実測調査の結果から、河川水と陸域土壌のダイオキシン類特性を比較し、その発生源について推定した結果、河川の地点、あるいは流出形態 (代掻き時等) によって水田土壌の流

出の影響が強い場合が確認された。一方、実測値に基づくダイオキシン類の有機炭素-水分分配係数  $K_{oc}$  は、様々な河川水において一定の値となり、分配平衡を仮定して流出挙動を推定することの妥当性が示された。

一方、本研究ではダイオキシン類の流出挙動に大きく影響する水文および懸濁物質 (SS) 流出のモデリングを一つの大きな目的とした。モデルは米国 EPA から無償公開されている水文水質挙動解析モデル (BASINS-HSPF) を利用し、これを野洲川流域に適用して任意地点における河川流量を再現した。その結果、時間流量の再現性が決定係数で 0.8 を超える値となり、良好な推定精度が確認された。また、SS 濃度については、季節変動を考慮した L-Q 式を用いて推定され、一定の再現性が確認された。

次に、ダイオキシン類の流出負荷量推定モデルを提案し、上述の結果を利用して野洲川中流付近 (三雲観測所) における時間負荷量の推定を行った。モデルパラメータについては、予測平均値と 95% 予測信頼区間をそれぞれ設定し、流出負荷量の推定範囲を示した。ダイオキシン類流出負荷量の予測平均値は 3.33 gTEQ/year となった。ダイオキシン類の存在形態について着目すると、流出負荷量全体 (年間値) に占める溶存態ダイオキシン類の割合は極めて少なく (0.3 ~ 7.7%), 負荷量としてはあまり寄与していないことが分かった。ダイオキシン類の流出形態については、降雨流出時 ( $Q > 25 \text{ m}^3/\text{sec}$ ) の割合が大きく負荷量全体の 7 ~ 8 割を占めていた。降雨流出の期間は 1 年間のうち約 35 日間であることを考慮すると、短期間に大量のダイオキシン類が SS とともに輸送されていることが分かった。一方、晴天時に着目すると、溶存態として輸送されるダイオキシン類が約 9.2% と無視できない値であることが明らかとなった。

本研究では、さらに、底質圏の調査および解析から得られた結果をもとにして、ダイオキシン類蓄積状況の経年変化と空間分布および全体の蓄積量の推定と陸域土壌の蓄積量との比較等を行った。河口底質の分析結果からは、安曇川河口におけるダイオキシン類汚染レベルが、安曇川流域の森林土壌のそれと同レベルであったのに対して、野洲川河口では、一部の底質で水田土壌の汚染レベルに近い値を示した。これは、流域毎にダイオキシン類汚染レベルが異なることに加えて、水田土壌粒子の流



出の影響が反映された結果であった。特に、1980年まで存在していた野洲川旧河口付近にはその傾向が顕著であった。

琵琶湖底質コアの分析結果からは、ダイオキシン類蓄積量の鉛直プロファイルを評価した。底質コアの層別堆積年代を Pb210法によって推定し、過去に流出・蓄積したダイオキシン類の歴史の変遷とその起源について解析した。その結果、1980年頃から2000年頃にかけて堆積した底質のダイオキシン類汚染レベルが非常に高く、ごく最近はその汚染レベルが下がってきていることが分かった。底質コアにおける汚染レベルの上昇時期は、ダイオキシン類を含む農薬の使用開始時期と近くっており、使用禁止後の濃度の減少傾向も似通っていること等から、底質中のダイオキシン類は水田土壌流出の影響を強く反映していることが明らかとなった。

湖岸底質のダイオキシン類汚染レベルは、特定の集水域からの影響を強く受けるために、場所によって異なることが確認される一方、琵琶湖中央付近の底質の分析結果から、沖に出るほど集水域の影響が混合・攪乱されるために、その汚染レベルが類似する傾向も確認された。また、湖岸底質のダイオキシン類汚染レベルに与える集水域特性の影響を流域別に評価した結果、集水域の水田面積や人口、焼却場の数あるいは道路密度等との間に一定の相関が確認された。ダイオキシン類蓄積量分布を推定した結果、南湖よりむしろ北湖南部で高くなり、集水域からの流出挙動は河口付近（湖岸）の底質へのダイオキシン類蓄積に大きく影響するが、その範囲は限定的であることが示唆された。蓄積量分布を空間積分し、琵琶湖底質全体へのダイオキシン類蓄積量を推定した結果（約 9,600 gTEQ）、森林土壌中の蓄積量（約 3,100 gTEQ）や、実測値ベースで推定された水田土壌中の蓄積量（約 14,400 gTEQ）に匹敵するストレージであることが明らかとなった。これら kg オーダーのダイオキシン類蓄積量に比べて近年の大気排出量（約 33.6 gTEQ/yr, 2001年）、流域への沈着量（約 7.6 gTEQ/yr, 2001年）および河川水の流出負荷量（約 3.33 gTEQ/yr, 1998年野洲川）は圧倒的に少ないことが明らかとなった。これらのことから、琵琶湖流域におけるダイオキシン類の蓄積量バランスは容易に変わらないことが予測され、そのため下流域の水環境の水質改善は、短期的には困難であることが示唆された。

本研究では、流域圏におけるダイオキシン類の詳細な調査とモデリングを実施することによって、その挙動の実態を解明した。特に有機物質や懸濁物質（SS）等の一般的な水質指標がダイオキシン類の挙動に密接に関係することや、大気・水文モデル等のソフトウェアを用いることによって、挙動の再現を可能としたことは極めて重要な成果であると言える。本研究のもう一つの成果は、マクロな挙動・動態とミクロな現象をリンクし、その解析の方法論とともに適用の有効性や汎用性について言及したことである。この手法は、情報整備レベルの異なる様々な流域、あるいは様々な物性を有する物質の挙動解析、さらにはシナリオ設定に基づいた将来予測等への拡張性を含んでいる。今後、さらに検討を進めていくことで、戦略的流域管理政策に重要な定量的情報を提供できると期待される。

## 2.2 エコロジカル・フットプリントの概念を用いた 天橋立・阿蘇海流域の統合的湖沼流域管理方法 の構築

阿蘇海は日本三景の一つとして有名な「天橋立」と共に、京都府レッドデータブックに「要注意地形」として登録されている貴重な自然である。汽水湖である阿蘇海（面積 5.01 km<sup>2</sup>、最大水深 14 m、平均水深 8.4 m）は、外海の宮津湾とは天橋立と呼ばれる砂州で隔離されている内海である。かつては豊富な漁場であり、海水浴ができ、青く美しい豊かな自然であった。昭和30～40年代以降、流域から流入する汚濁物質の蓄積が進んで急速に水質や底質の悪化が進行した。表層では赤潮がしばしば発生し、底質は有機物が沈殿して悪臭の原因となる硫化水素を発生する状態となっている。漁獲量は昭和13年には約 2,100 ton であったが、昭和50年以降は 20～50 ton に激減している。

阿蘇海の水質・底質浄化の取り組みとして、平成4年度から流域下水道の供用がはじまり、平成19年度現在の下水道幹線普及率は約70%となっている。しかしながら、下水道幹線への接続率が増加せず、依然として富栄養化の指標となる環境基準項目が達成されることはなく、近年特に夏季の悪臭問題が顕在化している。天橋立・阿蘇海的环境改善のためには、既存事業だけでは抜本的解決には繋がらない。流域からの汚濁物質の流入削減をも含めた総合的な環境改善マスター

プランの構築が求められている。専門家の協力の下に、関係自治体、関係団体や地域住民が一体となって取り組んでいくことが必要である。

本研究ではまず、天橋立・阿蘇海流域の流域環境情報（土地利用・汚濁負荷源等）の収集と、GISを用いた整備を行い、河川においてサンプリング調査を実施し、流域内の汚濁排出実態の把握を行った。さらに、これらの成果を基に、流域から阿蘇海への汚濁の実態を再現する流域モデルの構築を実施してきた。また、阿蘇海における湖水と底質のサンプリング調査により、湖内での水質形成機構の把握も行った。この実測結果を基に、湖内モデルを構築し、水質形成の再現も実施してきた。そして、これらの流域モデルと湖内モデルを連結させることにより、流域での排出汚濁負荷量と湖内水質との対応が可能な流域統合モデルの構築を実施してきた。

本研究では、汚濁負荷量の実態や対策効果を、流域住民にも分かりやすい指標を用いて表現する方法の構築も目指している。エコロジカル・フットプリントの概念を導入し、阿蘇海的环境容量を阿蘇海1個分と表わし、そして流域住民等の排出する汚濁負荷量には何個の阿蘇海が必要であるかを示す指標を構築しようとしている。これは、流域住民を含めた各汚濁源を対象として、それぞれの主体が阿蘇海の水質にどれだけの影響を与えているかを上述の流域モデルや湖内モデルを用いて評価しようとする試みである。特に、流域住民に対しては、居住地域、下水処理形態、職業、土地利用形態等によって異なる一人ひとりの阿蘇海への影響をエコロジカル・フットプリントの概念を利用して、阿蘇海何個分といった指標で表現することによって、啓発・教育の手段としようとするものである。

構築したモデルは啓発・教育の手段だけではなく、行政、流域住民それぞれが流域内で取り得る様々な水環境保全対策の影響評価にも利用することが可能である。そして、様々な対策シナリオを立て、それぞれの場合のシミュレーションを行い、経済的な観点をも含めた各対策の有効性の評価を行うことが可能となる。本研究では、流域内関係者（自治体・関係団体・流域住民）に適切で効果的な水環境保全対策の提案を行い、そして他の湖沼にも適用可能な統合的湖沼管理手法を構築することを目指している。

### 3. 水環境中天然有機物の科学的再現と 水処理プロセスへの影響解明

水環境中に溶存する天然有機物質（NOM: Natural Organic Matter）は、浄水処理において利用される膜ろ過処理の膜の寿命を縮める目詰まり（ファウリング）の原因物質、塩素処理・オゾン処理・促進酸化処理等の消毒に伴って生じる有害な有機毒性物質の前駆物質として知られている。NOMは多種多様な高分子有機物の集合体であり、その分子構造の特定が難しい。NOMの浄水処理分野に及ぼす影響については、それぞれの研究者がその研究施設近傍で河川、湖、海等の水環境試料水を手入し、研究したものについての成果が数多く発表されている。また、水環境中のNOMを疎水性・親水性、酸性・塩基性、分子量等の実験操作因子を変化させて分画・抽出・濃縮し、それぞれの分画の構成比を調査し、各分画が膜ろ過処理や消毒処理に対して及ぼす影響を相対比較した研究報告も数多く存在する。

NOMの中のどの成分あるいはどの成分の複合体が相対的にどの程度影響しているかを普遍的に評価するための一つの方法としては、可能な限り多種類のNOM（即ち水試料）を世界中から集め、膜ろ過処理や消毒処理等に関する実験を行い、その結果をもとに、あるいは各水試料について対処療法的に研究発表されている成果をもとに、統計的な解析を実施し、結論を得ようとするのが考えられる。しかしながら、時間と労力を考慮すると、また将来における有用性・発展性を考えると、これは決して有効な方法であるとは言えない。

本研究では、より有効かつ普遍的な方法として、NOMの起源を数種類想定し、それら有機物質の環境中での挙動・分解等を考慮して、数種類のNOM構成成分の化学構造式を導出する方法を利用している。一方、実際の水環境中NOMに、疎水性・親水性、酸性・アルカリ性、分子量等のマクロな実験操作因子によって分画・抽出する方法を適用し、これら各分画についてLC/MS（液体クロマトグラフ質量分析計）、NMR（核磁気共鳴分光分析装置）、FTIR（フーリエ変換赤外光度分析計）等の高度機器分析等によって得られる結果を考慮して、数種類のNOM構成成分の化

学構造式を検討している。現状では、流域の動植物由来の化学構造として、疎水性酸に分類されるテルペノイド、縮合タンニン、リグニン、および疎水性ではあるが酸・塩基の両方の性質を有するテルペノイド骨格アミノ糖を導出している。また、水環境中藻類由来の化学構造として、親水性酸とコロイド状物質の2種類のアミノ糖も導出している。

NOMを代表する複数成分の化学構造式（即ち、化合物群）を同定することは、膜ろ過処理については目詰まり原因物質の究明に、また、消毒処理については既知・新規消毒副生成物の同定・定量に繋がると考えている。また、これらの成果は、安全な飲料水を確保するために必要な浄水処理の中でも、膜ろ過処理および消毒処理のプロセスにおいて、目詰まりし難く長寿命膜素材の選択と新規開発および有機毒性物質が生成し難い消毒方法の選択と新規開発といった産業の創出に繋がることは言うまでもない。

#### 4. 油汚染土壌のバイオレメディエーション とリポソームを用いたバイオ ミメティックセンサの開発

化石燃料の大量消費は我々に数々の恩恵をもたらしているが、それが数多くの汚染を引き起こしていることも事実である。石油・石炭による土壌汚染は、国内に限らず世界中に相当量が蓄積されており、今後も増加すると考えられている。これらは多環芳香炭化水素類（PAHs）や重金属等の有害物質を含むため、周辺の土壌や地下水を介しヒトや生態系に悪影響を及ぼす恐れがあり、既に顕在化している例もある。これら油汚染土壌の浄化方法として、バイオレメディエーション（Bioremediation）と呼ばれる技術がある。この技術は微生物の代謝能力を利用する生物学的な浄化方法であるため、原位置処理、省エネルギー、安価である等の利点を有する。環境質管理分野が取り組んでいる石油・石炭由来の油汚染土壌のバイオレメディエーション技術と、その処理による二次汚染を防ぐための毒性監視システムについて紹介する。

##### 4.1 油汚染土壌のバイオレメディエーション

汚染土壌中の成分は、毒性の高いPAHsや重金属等の比較的低分子から、レジン・アスファルテン分等の

極めて高分子の成分まで複雑な組成を持つ。低分子油分は粘性が弱いいため、すぐに浸透し地下水に至り、流れによって汚染が拡大する。一方、高分子油分は粘性が強いため、ほとんど浸透せず土粒子に吸着される。高分子油分は拡散せず一見安全に思われるが、地下等の嫌気的な環境では長期間にわたって徐々に分解を受け、代謝産物として毒性の高いPAHs等を生じ、継続的にこのような有害物質を放出し続け、長期的な環境影響を与えることが懸念される。したがって、低分子油分だけでなく、高分子油分の処理が重要であることがわかる。しかしながら、現在行われているバイオレメディエーションは好気条件でのものが多く、反応は迅速であるが低分子油分しか分解できない。そしてその結果、高分子油分が地中に残留するという問題が生じている。

本研究では、嫌気条件下で高分子油分を処理するバイオレメディエーション技術の開発を行っている。嫌気条件の中でも、特に硫酸塩還元条件下でのバイオレメディエーションに注目し研究を行っている。環境質管理分野のこれまでの研究において、硫酸塩還元条件下で難分解性高分子物質であるリグニンが微生物分解を受けたことから、この成果を応用すれば、これまで難分解性とされてきた高分子油分の分解が可能になると考えたからである。さらに、硫酸塩還元条件下ではメタン発生が抑制される効果があることもわかっており、環境負荷の小さな処理方法となることが期待できる。

本研究では、まず、実際の石炭系油汚染土壌を用いて硫酸塩還元条件下におけるバイオレメディエーション実験を行った。その結果、高分子油分が微生物分解を受け低分子化し、PAHsが生じることがわかった。次に、どのような条件下で微生物分解が活性化されるかの最適条件を調べるために、温度、pHおよび一次基質であるグルコース濃度を変化させて実験を行った。

これらの実汚染土壌を用いた実験では、一定の成果を挙げたが、一種類の実汚染土壌のみの結果では普遍的な成果とは言い難かった。また、油分分解性は初期の汚染度合いにより大きく左右されると考えられた。そこで現在は、より普遍性のある結果を得るために、また任意の汚染濃度を作成できるという点から、モデル油汚染土壌を利用して実験を行っている。モデル油

汚染土壌は、土壌を模したイソライトをモデル土壌として用い、石炭乾留残渣であるタールをモデル汚染油として、これらを混ぜ合わせるにより作成している。さらに、この汚染土壌には微生物は生息していないと考えたため、返送汚泥を硫酸塩還元条件下で培養したものを植種している。

まず、本研究では、実汚染土壌の初期汚染濃度と同程度の汚染濃度のものを中心に、汚染濃度を3段階（8, 40および200 mg-tar/g-dry soil）に設定した。実験の結果、初期の汚染濃度が低ければ、最も高分子のアスファルテン分までも分解が可能で、汚染濃度が高くなるにつれて、高分子油分の分解率は低くなることがわかった。また、汚染濃度が高すぎる場合、硫酸塩還元条件とならないこともわかった。これらのことから、実際の適用に際しては、40 mg-tar/g-dry soil 程度の汚染濃度までは十分に適用可能であると考えられた。

さらに、油分分解の結果をより普遍的なものとするために、また、最適栄養塩類濃度・量の推定を行うために、40 mg-tar/g-dry soil の汚染土壌を用いたリアクターを数本作成し実験を行った。同時に、対照実験として一次基質であるグルコースを与えない系および植種を行わない系をそれぞれ作成した。観測の結果、アスファルテン、レジンおよび芳香族分のどの画分についても時間の経過と共に一次的に減少する傾向が観られた。また、総油分濃度の減少率は265日間で約50%であった。また、265日目までのDOCの消費量：窒素消費量：リン消費量は約37:4:1となり、活性汚泥の適正值とされる37.5:5:1に近い結果であった。なお、対照実験系では、油分、窒素、リン、DOCは減少しなかった。

#### 4.2 リボソームを用いたバイオミメティックセンサの開発

上述の様に、高分子油分は、分解を受けると低分子化し、毒性の高いPAHs等を生じる可能性があるため、水系生態系への悪影響等が生じる危険性がある。したがって、このような毒性物質の放出を防止・制御することが極めて重要である。一般に毒性評価法として用いられることが多いのはバイオアッセイであるが、労力、コストおよび特別な試験環境が必要であり、再現性にも問題がある。一方、毒性監視の方法として

は、ある特定物質をマーカーとして汚染の監視を行うということも考えられるが、油汚染土壌の場合、油産出元により油の成分組成が異なるためこれも困難である。したがって、総量的な評価で毒性を監視する必要がある。

これらの問題を解決し、リアルタイムでの毒性監視を可能とするのがリボソームを用いた毒性監視システムである。リボソームとは両親媒性であるリン脂質二重膜からなる人工小胞体であり、生体膜と同じ構造を持つものである。リボソームへの有機・無機物質の総蓄積量をモニタリングすることにより、生物を使用しないリアルタイムでの毒性監視システムの構築が期待できる。

本研究では、リボソーム内部の水相に蛍光物質を封入したものを作成している。これに浸出水を反応させると浸出水中に含まれる毒性物質のリボソームへの分配が起きる。分配が起きると、膜が緩み、内部に予め封入しておいた蛍光物質が外部へ流出する。その蛍光強度を常時測定することにより、混合物の毒性評価・監視をリアルタイムで行うことができることになる。

このリボソームを利用した毒性監視方法を油汚染土壌のバイオレメディエーションの運転・管理に応用することを検討した。嫌気状態での処理では、高分子油分の低分子化が進み、低分子油分が蓄積される。低分子油分の増加に伴ってリボソームへの分配が進み蛍光強度は増加していく。この時に好気条件に切り替えることになる。好気条件では低分子油分は迅速に分解され、得られる蛍光強度も徐々に減少して行く。この際、高分子油分がまだ残っていれば再び嫌気状態にし、高分子油分の分解を行う。嫌気状態での運転において、一定期間以上蛍光強度が上昇しなければ、毒性物質の環境中への放出は行われておらず、無害化したとみなすことができることになる。

生体膜は様々な脂質から構成されている。リボソームは生体膜を模擬したものであり、毒性監視に使用する場合、なるべく生体膜に近いものであることが望ましい。また、リボソームは容易に精製でき、高い再現性を持つ必要がある。そこで本研究では、生体膜を構成する代表的なリン脂質であるジパルミトイルホスファチジルコリン（DPPC: Dipalmitoylphosphatidylcholine）を選び、リボソームを精製することにした。



ホスファチジルコリンは安定したリポソームを形成し、pHやイオン強度の変化による影響を受けにくいとされている。DPPCはホスファチジルコリンの脂肪鎖炭素数が16のものである。相転移温度は42℃であり、常温(25℃)で安定したゲル相である。リポソームに内包させる蛍光物質には、フルオレセイン(Fluorescein)を選定した。フルオレセインは水溶液中で強い蛍光を持つことが知られており、化学発光試薬として多く用いられている。一方、リポソームの精製には様々な方法があり、その方法によって膜の大きさや形態が異なる。本研究では、ロータリーエバポレーターによる減圧を2段階で行い、有機溶媒と水溶液との沸点の違いを利用する方法を採用している。

油で汚染されている土壌にはPAHsが高い濃度で存在する。また、油汚染土壌のバイオレメディエーションを硫酸塩還元状態で行うと3環のPAHsが急激に増加する場合がある。そこで本研究では、米国EPAがその基準を定めている16種類のPAHsの中から、環数が3～4環の6種類を選び、毒性監視の対象とすることにした。

PAHs溶液に蛍光物質内包リポソームを添加し、溶出するフルオレセインの蛍光強度によってPAHsの定量を行った。全てのPAHsで、リポソームを添加するとフルオレセインの蛍光ピークが増加した。PAHsの種類により、リポソームから溶出してくるフルオレセインの蛍光の強さは異なっていたが、全てのPAHsについて、米国EPAの基準値以下の濃度までそれぞれ定量が可能であることがわかった。

ここでは、石油・石炭由来の油汚染土壌のバイオレメディエーション技術と、その処理による2次汚染を防ぐための毒性監視システムについて紹介した。現在国内で用いられているバイオレメディエーション技術の多くは、欧米から輸入されたものである。国際競争力という観点から考えても、日本独自の技術を開発する意義は大きい。それに加えて、リポソームを利用する毒性監視のシステムは油汚染土壌のバイオレメディエーションへの適用だけではなく、その他の場でも利用することが可能なバイオミメティックセンサとしての開発をすることができれば、新しい産業の創出にもつながると考えられる。

## 5. 微量汚染物質と統合的湖沼 流域管理との融合へ

日本の水環境を支えてきた上下水道は、本来、水系伝染病の予防や公共水域の一般有機汚濁の解消に貢献するために作られてきた。近年問題となってきており、今後ますますその問題が大きくなるであろう微量汚染物質に関しては、これを集約・回収する下水処理場はその下流生態系への影響という点において、その除去率によっては、ある意味の加害者となる可能性がある。また、下水処理場は微生物を選択的に高濃度で培養していることから、新たな感染性病の根源となる可能性も否めない。

環境質管理分野では、微量汚染物質および下水処理場内の微生物群集といった観点から、下水処理場が流域の生態系リスクに与える影響を把握し、流域内におけるこれらに起因するリスクを制御するために下水処理場が果たすべき機能を定量的に評価することを目的としての研究を今後実施する予定である。

微量濃度であっても人間を含む環境生態系に多大な被害を及ぼすことが懸念される微量汚染物質の発生源、発生量、下水道を含めた流域内での挙動・消長・リスク等については、これまで各研究者が時代背景を鑑みて重要であると考えられる微量汚染物質を選択して、個々の場において研究を進めてきた。しかしながら、この方法では、個々の物質については研究データが蓄積されていくが、特に挙動・消長・リスクに関して、過去に研究されたことのない物質については、過去の研究成果を利用することができない。即ち、過去の研究に普遍性を見いだすことが難しい。

環境質管理分野が研究対象とする微量汚染物質としては、これまでに採り上げられてきた物質(例えば、発癌物質、変異原物質、農薬、ダイオキシン類、環境ホルモン、医薬品や日用品等)を対象とする。ただし、研究の普遍性を考慮して、分子構造に特に注意して対象物質を幾つかに分類して選択していくことを考慮している。研究の場としては、琵琶湖を含む琵琶湖流域圏とする。

選択した各種の微量汚染物質を対象として、発生源と発生量を文献調査し(発生量については実測を含む)、下水処理場の各プロセス内(高度処理を含む)

での挙動を実験的に解明する。また、環境中での挙動を実サンプルの分析を通じて把握し、これを再現することが可能なシミュレーションモデルを構築する。微量汚染物質および下水処理場の微生物群集については、これらの生態系への毒性を一連のバイオアッセイを利用して解明し、これらの結果を基に、GISを利用して流域内におけるリスクを視覚的に表現する方法を構築する（この研究方向を順方向とする）。

流域内における任意の地点におけるリスクをゼロとすることはほぼ不可能である。したがって、環境質管理分野では、バイオアッセイの結果等を基にまず許容可能なリスクを考究する。次に、この許容リスク値を基に流域内における挙動・消長等を逆算し、最適な下水処理場の位置（戦略的環境アセスメント（Strategic Environmental Assessment）に通じる）、およびその

下水処理場において実施しなければならない処理を定量評価する。また、この評価値を達成するために必要なユニットプロセスの組み合わせを提案する（この研究の方向は逆方向となる）。

一連の順方向と逆方向の研究は、選択した微量汚染物質について実施し、これらの成果、およびLFER（Linear Free Energy Relationship）、分子軌道論、QSAR（Quantitative Structure Activity Relationship）等の分子構造に関連する理論を利用して、未知の微量汚染物質についても、流域内での挙動・消長・リスクを推定することが可能なものとする。

微量汚染物質から始まった研究は、統合的湖沼流域管理の方向へと進展し、さらにこれら両者を融合する形として進化しようとしている。